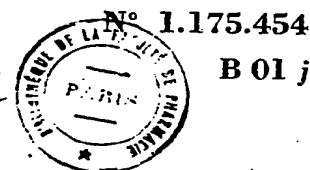


# BREVET D'INVENTION

Gr. 14. — Cl. 8.

Classification internationale :



**Four de contact.**

Société dite : CIBA (SOCIÉTÉ ANONYME) résidant en Suisse.

Demandé le 15 avril 1957, à 16<sup>h</sup> 40<sup>m</sup>, à Paris.

Délivré le 17 novembre 1958. — Publié le 26 mars 1959.

(Demande de brevet déposée en Suisse le 19 avril 1956, au nom de la demanderesse.)

Il est connu, dans les fours de contact servant à la mise en œuvre de procédés de catalyse gazeuse hétérogène, dans lesquels il faut maintenir, pour le déroulement de la réaction, un intervalle déterminé de température, de disposer dans un récipient le catalyseur en plusieurs couches et soit de refroidir, soit de réchauffer le courant gazeux qui passe à travers ces couches pour régler par échelons la température entre les différentes couches. Pour cela, on peut prévoir, par exemple, entre les couches de catalyseur, des éléments d'échange de la chaleur, comme des serpents de refroidissement, etc.

Il peut se produire une difficulté supplémentaire lorsqu'il faut remplacer et régénérer le catalyseur après des périodes de fonctionnement relativement courtes. Quand on utilise les fours de contact précités, comportant plusieurs couches de catalyseur, il se produit plus rapidement dans les couches traversées en premier par le gaz de la réaction que dans les couches traversées en dernier la perte d'activité ou une augmentation indésirable de l'activité du catalyseur. C'est en particulier dans le cas où une augmentation de l'activité du catalyseur favorise un déroulement de la réaction qui soit différent de celui que l'on désire qu'il est indispensable toutefois de remplacer le catalyseur et par conséquent d'introduire une interruption de fonctionnement dès que la première couche de catalyseur cesse de jouer son rôle. Aussi a-t-on déjà proposé d'utiliser, lorsqu'on fait usage d'un catalyseur en grains fins, des lits fluidisés séparés, et de travailler suivant ce qu'on appelle le procédé de circulation d'une masse fluidisée. Dans ce procédé, le catalyseur circule de façon continue entre le four de contact et un récipient de régénération, de sorte que la régénération du catalyseur peut se faire sans interruption du fonctionnement.

Cependant, ce procédé demande des installations assez coûteuses et compliquées, dont la surveillance et le réglage présentent certaines difficultés et qui ne conviennent, en outre, que pour des débits très

grands, ce qui n'est pas le cas pour le présent procédé. Ce procédé n'est pas applicable non plus lorsqu'il s'agit d'un catalyseur formé de morceaux relativement gros, ce qui est avantageux, dans bien des procédés, à cause de la résistance que le courant de circulation doit surmonter.

L'un des buts de la présente invention est ainsi de parvenir à un four de contact dans lequel le catalyseur est disposé en plusieurs couches séparées et qui permet, tout en étant d'une construction simple, de remplacer le catalyseur sans interrompre le fonctionnement.

Un autre but de la présente invention est de parvenir à un four de contact permettant de remplacer sans interrompre le service un catalyseur formé de morceaux relativement gros.

D'autres buts de la présente invention ressortiront en détail de la description suivante.

On parvient alors, conformément à la présente invention, à la réalisation des buts précités au moyen d'un four de contact amélioré qui se compose essentiellement d'un récipient comportant un orifice d'entrée et un orifice de sortie pour un courant gazeux, ainsi qu'au moins deux couches d'un catalyseur, disposées en travers par rapport au sens du courant gazeux, et perméables à ce courant de gaz, ce four de contact étant caractérisé par le fait que dans la paroi du récipient précité et dans le voisinage immédiat d'une zone au moins du bord de chacune des couches de catalyseur sont prévues des ouvertures munies de moyens pour faire entrer ou sortir, ou à la fois entrer et sortir, le catalyseur par éclusage de chaque couche individuelle.

En général, le récipient est un tube de grand diamètre et allongé, d'une section par exemple cylindrique ou d'une autre section appropriée, qui est divisé à l'intérieur par des couches de catalyseur disposées perpendiculairement à l'axe du tube. En général, chacune des couches précitées est formée par un catalyseur en morceaux, maintenu immobile sur place par le fait qu'il est disposé

entre deux cloisons transversales perforées, formées par exemple d'une toile métallique, les ouvertures dans les cloisons transversales devant, bien entendu, être plus petites que les morceaux de catalyseur. Plusieurs couches de ce genre peuvent être réunies d'une manière connue en unités et si la réaction est exothermique ou endothermique, on peut monter, entre les unités précitées, des éléments de refroidissement ou de chauffage pour le réglage de la température par échelons. L'épaisseur de la couche de catalyseur placée entre des éléments successifs de refroidissement, ou de chauffage, peut alors être adaptée au déroulement désiré pour la réaction et on peut obtenir, de cette manière, de conduire la réaction avec précision.

La vidange du catalyseur usé, qui se présente en général sous la forme de morceaux et qui appartient à une couche, se fait avec avantage par l'intermédiaire du dispositif d'éclusage à la sortie et le rechargement du catalyseur frais dans la couche considérée se fait par l'intermédiaire du dispositif d'éclusage à l'entrée en mettant à profit la pesanteur.

Ensuite, on dispose le tube formant récipient avec avantage horizontalement, de telle sorte que les couches du catalyseur soient placées verticalement.

Le tube formant le récipient peut être monté de façon à pouvoir tourner autour de son axe et, dans ce cas, il suffit pour chaque couche de catalyseur d'une ouverture ménagée dans la paroi du récipient et adjacente à une zone du bord de la couche, l'ouverture pouvant servir alternativement et suivant la position du récipient à la vidange ou au retrait et au rechargement du catalyseur.

Si le tube du récipient est supporté de façon rigide, il faut prévoir de préférence pour chaque couche une ouverture voisine du sommet de la couche, pour le chargement du catalyseur, et une ouverture voisine du point le plus bas de la couche, pour l'extraction du catalyseur.

D'autre part, à l'extérieur et contre la paroi du récipient, on a adjoint à chaque ouverture des moyens pour ouvrir et fermer cette dernière de façon étanche au gaz, comme par exemple des tiroirs ou des robinets et, d'autre part, des moyens pour le raccordement, de façon étanche au gaz, de l'embouchure d'un récipient de chargement ou de vidange par éclusage avec l'ouverture considérée, comme par exemple des brides.

Comme le four de contact selon l'invention présente au moins deux couches de catalyseur, il est possible d'éliminer temporairement l'une des couches sans interrompre le service. On procède alors de la manière suivante. Tout d'abord, on raccorde un récipient d'extraction par éclusage à l'ouverture destinée à faire sortir le catalyseur par éclusage de la couche considérée, puis on vide le

catalyseur usé dans le récipient d'éclusage à la sortie et, après la refermeture de l'orifice de sortie par éclusage, on retire le récipient avec le catalyseur usé. Pour l'introduction, par éclusage, du catalyseur frais, on procède en sens inverse, c'est-à-dire qu'on raccorde le récipient de chargement par éclusage, contenant le catalyseur frais, à l'ouverture correspondante d'introduction par éclusage, à la suite de quoi on charge le catalyseur dans l'intervalle vide à l'intérieur du récipient et finalement on retire le récipient vide après que l'orifice du chargement par éclusage a été refermé.

Lors du chargement ci-dessus décrit du catalyseur, il peut toutefois arriver fréquemment que, entre la paroi du récipient et la couche nouvellement formée par le catalyseur en morceaux, il se produise des vides, en particulier dans la moitié supérieure de la couche. Comme une partie du courant de gaz circulerait alors le long de la paroi du récipient et serait ainsi soustraite à l'action du catalyseur, une telle formation de vides qui peut, du reste, se produire également dans les couches voisines lorsqu'on vide une couche déterminée, en raison des vibrations des parois de séparation chargées d'un seul côté, est éminemment indésirable.

Pour remédier à cet inconvénient et faire le nécessaire pour que la totalité du courant gazeux passe à travers le catalyseur, on donne en conséquence à la section des couches considérées, en particulier dans la moitié supérieure, une valeur qui, avec avantage, est supérieure à la section du courant gazeux passant à travers le four de contact.

Pour cela, on délimite à l'intérieur du récipient, dans chaque couche du catalyseur, au moins les zones du bord qui sont voisines des orifices de chargement ou d'extraction du catalyseur, ou à la fois des orifices de chargement et des orifices d'extraction, par des cloisons transversales imperméables au gaz, de telle sorte que seule la partie principale subsistante de la couche considérée soit délimitée par des cloisons transversales perforées ou des toiles métalliques. La section du courant gazeux correspond alors sensiblement à la section des cloisons transversales perméables au gaz et on évite ainsi de façon certaine que le courant de gaz circule le long de la paroi du récipient sans passer à travers la couche de catalyseur. On peut procéder pour cela de la manière qui consiste à subdiviser par des cloisons transversales perforées l'ensemble de la section du récipient et en recouvrant les zones du bord de ces cloisons transversales qui sont voisines des ouvertures de chargement ou d'extraction, ou à la fois de chargement et d'extraction, au moyen d'éléments de plaques ou de nervures imperméables au gaz. Ou bien, on peut aussi exécuter les cloisons transversales de subdivision dont il s'agit de telle sorte qu'elles com-

portent des zones du bord qui sont imperméables au gaz et voisines des orifices de chargement ou d'extraction, ou à la fois des uns et des autres de ces orifices, et que ces cloisons transversales ne soient perméables au gaz ou perforées que dans les autres parties de leur étendue. Les zones du bord imperméables au gaz peuvent alors être formées par des parties de plaques ou de nervures d'une épaisseur plus grande que les parties perforées de la cloison transversale et avoir une section éventuellement en coin, ou bien la partie de la couche de catalyseur qui n'est pas traversée par le courant de gaz peut être contenue dans des cavités, semblables à nervures creuses, de la paroi du récipient.

L'invention va être décrite en détail ci-après en regard du dessin annexé, dans lequel :

La fig. 1 représente schématiquement et en partie en coupe longitudinale une forme d'exécution du four de contact selon la présente invention;

La fig. 2 est une coupe le long de la ligne II-II de la fig. 1.

Dans les fig. 1 et 2, 1 désigne un récipient reposant de façon fixe, en forme de tambour, et comportant une tubulure d'entrée 2 et une tubulure de sortie 3 pour un courant gazeux qui passe dans le sens des flèches à travers le récipient.

A l'intérieur du récipient sont disposées des couches 4 de catalyseur, au nombre total de neuf, placées perpendiculairement à l'axe du récipient, et qui sont groupées par trois en une unité. Après chaque unité, on a disposé à l'intérieur du récipient un élément 5 d'échange de la chaleur pour le refroidissement ou le chauffage indirect.

La paroi du récipient 1 est munie de nervures supérieures creuses 6 et de nervures inférieures creuses 6' qui forment des cloisons de séparation imperméables au gaz pour une zone du bord, en forme d'entonnoir, supérieure et une autre inférieure de la couche 4 de catalyseur dont la forme doit faciliter le chargement et l'extraction du catalyseur en morceaux, l'angle d'ouverture de l'entonnoir des zones précitées du bord devant être plus grand que l'angle d'écoulement naturel du catalyseur. La zone principale du milieu de chaque couche 4 du catalyseur est délimitée par des toiles métalliques 7 à mailles d'une ouverture plus petite que les morceaux du catalyseur. Chacune des nervures creuses 6 et 6' comporte au sommet et au point le plus bas une tubulure de chargement 8 et une tubulure d'extraction 8' qu'on peut ouvrir et fermer au moyen de robinets ou vannes 9 et 9' à tiroir.

L'extrémité des robinets 9 et 9' qui est tournée vers l'extérieur présente des brides qui ne sont pas représentées spécialement. Ces brides permettent le raccordement, d'une manière étanche aux gaz, d'un récipient 10 d'introduction ou de chargement par

éclusage et d'un récipient 10' d'extraction par éclusage, dont les embouchures portent des brides correspondantes qui ne sont pas représentées spécialement.

Le récipient de chargement par éclusage 10 présente, en outre, dans son fond, une tubulure 11 de chargement avec des robinets 12.

Si, pendant le fonctionnement du four de contact, il faut remplacer une couche quelconque de catalyseur 4, on commence par rattacher un récipient 10' d'extraction par éclusage de façon étanche à la bride de la tubulure d'extraction 8', puis on ouvre le robinet 9'. Ensuite, le catalyseur se vide au départ de la couche considérée, par l'intermédiaire de la nervure creuse inférieure 6' en forme d'entonnoir et de la tubulure 8', dans le récipient 10'. On referme alors le robinet 9', de sorte que le récipient 10' peut être retiré, avec le catalyseur usé. Sur la bride de la tubulure 8 de chargement par éclusage, on raccorde alors de façon étanche le récipient 10 de chargement par éclusage et ensuite on charge du catalyseur frais à travers la tubulure 11, le robinet 12 étant ouvert. Ensuite, on ferme le robinet 12 et on ouvre le robinet 9, de sorte que le catalyseur frais se vide dans l'intervalle formé par la nervure creuse supérieure 6, par les deux toiles métalliques 7 voisines et par la nervure creuse inférieure 6' et constitue une nouvelle couche de catalyseur 4.

Lors du chargement, par déversement, du catalyseur en morceaux, il peut éventuellement se former des vides dans les zones supérieures et inférieures du bord, en forme d'entonnoir, de la couche. Mais comme le courant de gaz ne peut passer que par les toiles métalliques 7, alors que les zones du bord supérieure et inférieure précitées sont délimitées par les cloisons transversales massives des nervures creuses supérieures et inférieures 6 et 6', on évite d'une manière certaine la formation de conduits de circulation où le courant gazeux passe sans contact efficace avec le catalyseur. D'autre part, le catalyseur enfermé dans la nervure creuse supérieure 6 sert également de réserve, afin de compenser ultérieurement un serrage, insuffisant au début, du catalyseur dans la zone de la couche qui se trouve entre les toiles métalliques 7.

Après chargement de la couche 4, on referme finalement le robinet 9, de sorte que le récipient 10 peut être retiré.

Au lieu du récipient de chargement par éclusage représenté dans la fig. 1, on peut aussi utiliser un récipient dont l'embouchure peut être fermée par un robinet. Dans ce cas, on peut remplir de catalyseur le récipient avant le raccordement avec la tubulure et, pour retirer le récipient, on ferme alors simultanément le robinet 9 de la tubulure 8 et le robinet de l'embouchure du récipient.

Le four de contact décrit permet ainsi le remplacement d'une couche de catalyseur sans qu'il faille arrêter le courant gazeux qui passe à travers le four de contact, car ce ne sont que de faibles quantités de gaz de la réaction qui peuvent pénétrer dans le récipient d'extraction par éclusage ou de chargement par éclusage, et le remplacement du catalyseur se déroule pour le reste entièrement à l'abri de l'atmosphère extérieure.

Le nouveau four de contact convient par exemple pour assurer l'oxydation catalytique de l'anthracène en anthraquinone par passage d'un mélange de vapeur d'anthracène et d'air sur un catalyseur alcalin à l'oxyde de vanadium tel qu'il est décrit dans le brevet français n° 1.098.846 du 3 avril 1954.

#### RÉSUMÉ

L'invention concerne un four de contact composé essentiellement d'un récipient comportant une ouverture d'entrée et une ouverture de sortie pour un courant gazeux ainsi qu'au moins deux couches perméables au courant gazeux et disposées transversalement par rapport à ce courant, caractérisé par le fait que, dans la paroi du récipient précité et au voisinage immédiat d'une zone au moins du bord de chaque couche individuelle de catalyseur sont prévues des ouvertures comportant des moyens pour introduire par éclusage ou extraire par éclusage, ou à la fois pour introduire et extraire par éclusage, le catalyseur de chaque couche individuelle.

Le présent four peut encore être caractérisé par les points suivants :

1° Les couches du catalyseur sont disposées verticalement, de sorte que l'introduction et l'extraction par éclusage du catalyseur peuvent se faire en mettant à contribution la pesanteur;

2° Les couches du catalyseur se composent d'un catalyseur en morceaux qui est maintenu en place par des cloisons transversales perforées, en particulier des toiles métalliques;

3° Les moyens de chargement et d'extraction par éclusage du catalyseur se composent d'une tubulure de chargement et d'une tubulure d'extraction, mises en communication avec les ouvertures précitées, qu'on peut ouvrir et fermer suivant les besoins à l'aide de dispositifs de fermeture étanches aux gaz, tels que des tiroirs ou robinets, et aux extré-

mités desquelles sont prévus en outre des moyens tels que des brides, pour le raccordement étanche aux gaz d'un récipient de chargement ou d'extraction par éclusage;

4° Le récipient de catalyse est monté de façon à être horizontal et à pouvoir tourner autour de son axe, et il est prévu pour chaque couche du catalyseur, dans la paroi du récipient de catalyse, une ouverture adjacente à une zone du bord de la couche, ouverture qui peut servir d'une manière alternée, et suivant la position du récipient de catalyse, à l'extraction ou au chargement du catalyseur;

5° Le récipient de catalyse est monté de façon à être horizontal et rigide, et on prévoit pour chaque couche du catalyseur une ouverture pour le chargement du catalyseur au voisinage du sommet de la couche, et une ouverture pour l'extraction du catalyseur au voisinage du point le plus bas de la couche;

6° Les zones du bord, au moins, de chaque couche du catalyseur voisines des orifices de chargement et d'extraction du catalyseur sont délimitées à l'intérieur du récipient de catalyse par des cloisons transversales imperméables au gaz, seule la partie restant de la couche précitée étant délimitée par des cloisons transversales perforées;

7° Toute la section du récipient de catalyse est subdivisée par des cloisons transversales perforées, les zones des bords de ces cloisons transversales qui sont voisines des orifices de chargement ou d'extraction ou de chargement et d'extraction, étant recouvertes par des éléments de plaques ou nervures imperméables aux gaz;

8° Les cloisons transversales subdivisant la section du récipient de catalyse présentent des zones du bord imperméables aux gaz, voisines des ouvertures de chargement ou d'extraction, et formées par des éléments de plaques ou de nervures, ces cloisons n'étant perméables aux gaz que dans le reste de leur étendue;

9° Les zones du bord de chaque couche de catalyseur qui sont voisines des ouvertures de chargement ou d'extraction, ou à la fois de chargement et d'extraction, du catalyseur sont en forme d'entonnoir.

Société dite : CIBA (SOCIÉTÉ ANONYME).

Par procuration :

D.-A. CASALONGA.

